

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

#3  
11.6.34

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 6月 6日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-169559

出 願 人

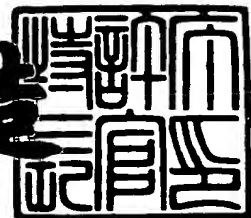
Applicant (s):

株式会社リケン

2001年 3月 2日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3009066

【書類名】 特許願

【整理番号】 RK-0463

【提出日】 平成12年 6月 6日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県熊谷市末広四丁目14番1号 株式会社リケン熊谷事業所内

【氏名】 高 云智

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県熊谷市末広四丁目14番1号 株式会社リケン熊谷事業所内

【氏名】 国元 晃

【特許出願人】

【識別番号】 000139023

【氏名又は名称】 株式会社リケン

【代表者】 小口 邦彦

【代理人】

【識別番号】 100080012

【弁理士】

【氏名又は名称】 高石 橋馬

【電話番号】 03(5228)6355

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009324

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【物件名】 図面 1

【包括委任状番号】 9706821

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 金属板からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有する燃料電池用セパレータにおいて、前記反応ガス通気溝の表面に高分子耐熱性被膜が形成されていることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記高分子耐熱性被膜が撥水性を有することを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 請求項 1 又は 2 に記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記高分子耐熱性被膜がビニル樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデン、芳香族ポリアミド、ポリイミド、ポリカーボネート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリエステル、ポリスチレン若しくはその誘導体、スチレンと他のモノマーとの共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリウレタン、シリコーン樹脂、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、レーヨン、キュブラ、アセテート樹脂、プロミックス、ビニロン、ビニリデン樹脂及び／又はアクリルからなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 4】 請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記高分子耐熱性被膜が 2 種以上の層からなる多層構造を有することを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 5】 請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記金属板がアルミニウム又はアルミニウム合金からなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 6】 請求項 5 に記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記高分子耐熱性被膜が前記反応ガス通気溝の表面に設けられたアルマイト被膜上に形成されていることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 7】 請求項 6 に記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記アルマイト被膜が多孔度 5 % 以上の多孔質アルマイト被膜であることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 8】 請求項 6 に記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記アルマイト被膜が、多孔度 5 %未満の緻密質アルマイト被膜及びその上に形成される多孔度 5 %以上の多孔質アルマイト被膜により構成されることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 9】 請求項 5 ～ 8 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記アルミニウム又はアルミニウム合金の純度が 99.5%以上であることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 10】 請求項 1 ～ 9 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記電極又は集電体との接触面に導電性被膜が形成されていることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 11】 請求項 10 に記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記導電性被膜が Pt、Au、Pd、Ru、Rh、Ir 及び Ag からなる群から選ばれる金属若しくはその合金、カーボン、又は導電性炭化物からなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は燃料電池用セパレータに関し、特に自動車の動力用車載燃料電池に使用できるセパレータに関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

燃料電池は燃料から電気へのエネルギー変換効率が高く、有害物質を排出しないため、次世代の発電装置として注目されている。特に、150℃以下の温度領域で作動する高分子イオン交換膜型燃料電池は盛んに研究されており、数年後の実用化が見込まれている。この燃料電池は比較的低い温度で作動でき、発電の出力密度が高く、小型化が可能であるため家庭用や車載用の燃料電池として適している。

【 0 0 0 3 】

通常、高分子イオン交換膜型燃料電池は、固体電解質膜の両面に燃料電極及び

酸素電極（空気電極）を固定して単電池（セル）を形成し、これを燃料ガスと空気を供給する通気溝を設けた板状セパレータを介して積層することにより構成される。固体電解質膜としてはスルホン酸基を有するフッ素樹脂系イオン交換膜等が用いられ、電極はカーボンプラックに撥水材PTFEと貴金属微粒子触媒を分散したもの等により形成する。水素－酸素燃料電池が作動する際には、水素ガスが酸化されて生じたプロトンが電解質中に進入し水分子と結合して $\text{H}_3\text{O}^+$ となり、正極側に移動する。正極側では通気溝から導入された酸素が水素の酸化反応により発生する電子を得て、電解質中のプロトンと結合し水となる。これらの反応過程を継続することにより電気エネルギーを連続的に取り出すことができる。この単電池の理論起電力は1.2Vであるが、実際には電極の分極、反応ガスのクロスオーバー（燃料ガスが電解質を透過して空気電極に漏れる現象）、電極及び集電体の接触抵抗による電圧降下等の原因で、出力電圧は0.6～0.8V程度である。従って、実用的な出力を得るためには、セパレータを介して数十の単電池をスタックし直列的に接続する必要がある。

## 【 0 0 0 4 】

前述の発電原理から解るように、電解質中には $\text{H}^+$ が多く存在するので、水又は水蒸気が多量に存在する電解質内部と電極の近傍では強酸性となる。また正極側で酸素が $\text{H}^+$ と結合して水を生成するが、電池の作動状態によっては過酸化水素が生成する場合がある。セパレータはこのような環境下に組み込まれるので、電気伝導性及び気密性に加えて、高い化学的・電気化学的安定性（耐食性）を有することが要求される。

## 【 0 0 0 5 】

従来の燃料電池用セパレータの多くは黒鉛板を機械加工したものである。黒鉛セパレータは電気抵抗が低く耐食性が高い反面、機械強度が低く加工コストが高い。車載用燃料電池に用いるセパレータは高い機械強度を有し低コストで加工可能であることが要求されるので、現状の黒鉛セパレータをそのまま車載用燃料電池に適用することは困難である。近年、黒鉛粉末を樹脂と混合して射出成形し、更に高温焼成することによりセパレータを製造する方法が検討されているが、得られる焼成体の密度が低いため気密性が悪いという問題がある。このセパレータ

を樹脂で浸漬し炭化再焼成することによって密度を高めることは可能であるが、製造工程が煩雑になる。加えて、このように製造されたセパレータの接触電気抵抗は従来の黒鉛セパレータより数倍大きく、電池の出力電圧低下が避けられない。

#### 【0006】

黒鉛セパレータ以外に、金属からなるセパレータも検討されている。金属セパレータはバルク電気抵抗が低く、高い気密性及び機械強度を有し、加工コストの低減が容易である。また、セパレータの厚さを薄くできるので小型化が容易である。更に、アルミニウムのような低比重金属材料を用いると燃料電池を一層軽量化することができる。しかしながら、金属セパレータにおいては、基材の金属そのものが腐食しやすいという問題がある。特にアルミニウム基材は非常に腐食速度が大きいことが報告されている（R. L. Rorup, et al., Mater. Res. Soc. Symp. Proc., 393 (1995)等）。また、腐食により生成した金属イオンが電解質膜に進入すると、膜のイオン伝導性が低下し電池の性能に影響を与える恐れがある。

#### 【0007】

特開平11-162478号は、貴金属を金属セパレータの全表面にメッキすることにより、耐食性を改善する手法を開示している。この手法はセパレータ性能に関しては問題が無いが、高コスト化を招き実用的ではない。コスト低減のためには貴金属メッキ層を薄くする必要があるが、湿式メッキの際に層厚を薄くすると微細なピンホールが発生し腐食の原因となり、また乾式メッキ（蒸着、スパッタ等）では生産効率が悪く、被膜の均一性も悪化してしまう。

#### 【0008】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、優れた耐食性を有する金属製燃料電池用セパレータを提供することである。

#### 【0009】

##### 【課題を解決するための手段】

上記課題に鑑み鋭意研究の結果、本発明者らは、一部に高分子耐熱性被膜を設



けた金属製燃料電池用セパレータは優れた耐食性を示すことを発見し、本発明に想到した。

【0010】

すなわち、本発明の燃料電池用セパレータは金属板からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有し、該反応ガス通気溝の表面に高分子耐熱性被膜が形成されていることを特徴とする。

【0011】

上記高分子耐熱性被膜は撥水性を有するのが好ましく、ビニル樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデン、芳香族ポリアミド、ポリイミド、ポリカーボネート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリエステル、ポリスチレン若しくはその誘導体、スチレンと他のモノマーとの共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリウレタン、シリコン樹脂、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、レーヨン、キュプラ、アセテート樹脂、プロミックス、ビニロン、ビニリデン樹脂及び／又はアクリルからなるのが好ましい。また、高分子耐熱性被膜は2種以上の層からなる多層構造を有するのが好ましい。

【0012】

基材として用いる金属板はアルミニウム又はアルミニウム合金からなるのが好ましい。この場合、セパレータの耐食性を更に改善するために、上記反応ガス通気溝の表面にアルマイト被膜を形成し、高分子耐熱性被膜は該アルマイト被膜上に形成するのが好ましい。アルミニウム又はアルミニウム合金の純度は99.5%以上であるのが好ましい。

【0013】

アルマイト被膜は多孔度5%以上の多孔質アルマイト被膜であるのが好ましい。また、アルマイト被膜が多孔度5%未満の緻密質アルマイト被膜及びその上に形成される多孔度5%以上の多孔質アルマイト被膜により構成されるのも好ましい。

【0014】

電極又は集電体との接触面には導電性被膜を形成するのが好ましい。導電性被

膜はPt、Au、Pd、Ru、Rh、Ir及びAgからなる群から選ばれる金属若しくはその合金、カーボン、又は導電性炭化物からなるのが好ましい。

## 【 0 0 1 5 】

## 【発明の実施の形態】

本発明の燃料電池用セパレータは金属板からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有する。反応ガス通気溝の表面には高分子耐熱性被膜が形成されている。本発明のセパレータは様々な燃料電池に使用でき、特に自動車の動力用車載燃料電池に好適に利用できる。

## 【 0 0 1 6 】

セパレータ基材として用いる金属板は緻密な構造を有するのが好ましい。ここで「緻密」とは、実質的に貫通孔等が無いために反応ガスが金属板を透過してクロスオーバーを生じないことを意味する。セパレータ基材としては高い電気伝導性及び耐震性能を有する金属からなるものを用いるのが好ましい。また、自動車の車載燃料電池として利用する場合はセパレータの軽量化が必要となるため、基材としてアルミニウム、チタニウム、マグネシウム等の軽金属又はその合金を用いるのが好ましく、アルミニウム又はアルミニウム合金を用いるのがより好ましい。基材の厚さは特に限定されないが、車載燃料電池に用いる場合は0.5～3 mmとするのが好ましい。基材としてどのような金属を用いた場合も本発明におけるセパレータの形状や作製法、高分子耐熱性被膜の材料や形成法等は基本的には同じであるので、以下、基材としてアルミニウム金属板を用いた場合の本発明による燃料電池用セパレータを図面を用いて説明するが、本発明はそれらに限定されず本発明の趣旨を変更しない限り種々の変更を加えることができる。

## 【 0 0 1 7 】

図1は本発明の一実施例による燃料電池用セパレータを含む燃料電池の一例を示す部分概略図である。図1の燃料電池は、固体電解質2とその両側に設けられたアノード3及びカソード4からなる単電池1を、セパレータ5を介して積層して構成されている。積層の両端は外部回路（図示せず）に接続する。

## 【 0 0 1 8 】

図1に示すように、本発明のセパレータ5は反応ガス通気溝9及び10を有する

。通常、反応ガス通気溝10とアノード3により形成される通路には燃料ガスが供給され、反応ガス通気溝9とカソード4により形成される通路には酸化剤ガスが供給される。反応ガス通気溝9及び10は機械加工、プレス、精密鑄造、化学研磨（エッチング）、電解研磨等の方法により所定パターンに形成すればよい。反応ガス通気溝の形状は図1ではコ字型としたが、電極に接する部分に反応ガス用通路が形成できる形状であれば特に限定されず、反応ガス通気抵抗が小さく、且つ発電効率が高くなるように設定するのが好ましい。通常、各反応ガス通気溝の深さは0.2～2mmとするのが好ましく、幅は0.5～5mmとするのが好ましい。

#### 【0019】

金属セパレータの耐食性を確保するために、電極等と接触しない反応ガス通気溝9及び10の表面に高分子耐熱性被膜6を形成する（図1参照）。高分子耐熱性被膜は緻密な構造を有するのが好ましい。ここで「緻密な構造」とは、水や水蒸気等のガスが透過しない構造を意味する。

#### 【0020】

高分子耐熱性被膜は撥水性を有するのが好ましい。撥水性を有する場合には水の滞留が無く母材の腐食が抑制され、セパレータの耐食性能が大きく改善できる。なお、本発明において「撥水性を有する」とは水の附着や滞留がないことを意味し、例えば被膜の固気界面に液体を接触させて固液界面に置き換えた際の接触角が90°以上であることをいう。また、燃料電池の作動温度は通常80～120℃であるので、高分子耐熱性被膜に用いる材料の軟化点は長期的な安定性を考慮すると120℃以上であるのが好ましい。

#### 【0021】

高分子耐熱性被膜をなす高分子材料としては、ポリビニルブチラール（PVB）等のビニル樹脂、ポリ塩化ビニル（PVC）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリフッ化ビニリデン、芳香族ポリアミド、ポリイミド、ポリカーボネート、ポリブチレンテレフタレート（PBT）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエステル、ポリスチレン若しくはその誘導体、スチレンと他のモノマーとの共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリウレタン、シリコン樹脂、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、レーヨン、キュプラ、アセテート樹脂、プ

ロミックス、ビニロン、ビニリデン樹脂及び／又はアクリルを用いるのが好ましい。

#### 【 0 0 2 2 】

高分子耐熱性被膜は 2 種以上の層からなる多層構造を有するのが好ましい。例えば図 2 に示すように、高分子耐熱性被膜を 2 種の高分子耐熱性被膜 6、6' からなる 2 層構造としてよい。この場合、高分子耐熱性被膜 6 は金属基材との密着性に優れた高分子材料により形成し、高分子耐熱性被膜 6' は防水性に優れた高分子材料により形成するのが、耐食性向上の観点から特に好ましい。

#### 【 0 0 2 3 】

高分子耐熱性被膜の形成方法は特に限定されない。例えば上記のような高分子材料を適当な有機溶剤に溶解し、得られた溶液中にセパレータをディッピング処理した後、乾燥して形成すればよい。また、薄い高分子フィルムでセパレータを被覆し、加熱により融着させて形成することも可能である。

#### 【 0 0 2 4 】

耐食性をより一層改善するために、反応ガス通気溝の表面を適宜処理するのが好ましい。図 3 に示すように、基材としてアルミニウム又はアルミニウム合金の金属板を用いる場合には、反応ガス通気溝 9 及び 10 内の表面に化学的及び物理的に安定なアルマイト被膜 7 を形成し、その上に高分子耐熱性被膜 6 を形成するのが好ましい。アルマイト被膜を形成したセパレータの耐食性劣化の原因は、アルマイト被膜が水蒸気中で膨潤成長し膜歪みを生じることにより発生するクラックや剥離であると考えられる。特に自動車に搭載する燃料電池の場合には、アルマイト被膜は温度及び湿度の変化が大きな環境下に置かれるため、膜歪みが生じやすい。本発明では、アルマイト被膜上に防水可能な高分子耐熱性被膜を形成するので、このような水蒸気によるアルマイト被膜の劣化を抑制することができる。

#### 【 0 0 2 5 】

アルマイト被膜は陽極酸化法等により形成できる。例えば電解液としてシュウ酸、硫酸、クロム酸等の水溶液を用いて電解することにより、 $\gamma$ -アルミナ被膜を基材表面に形成すればよい。耐食性の観点からはアルマイト被膜の膜厚は 5 ～ 50  $\mu\text{m}$  であるのが好ましく、10 ～ 30  $\mu\text{m}$  であるのがより好ましい。

## 【 0 0 2 6 】

陽極酸化条件を適宜調整することにより、緻密な硬質アルマイト被膜を形成することができ、より一層耐食性が向上する。また、陽極酸化処理を施した後、沸騰水又は水蒸気で処理するとアルマイト被膜に特有な微細孔を閉じることができる。

## 【 0 0 2 7 】

陽極酸化の電解条件を適切に選択することにより、アルマイト被膜に微細な垂直細孔や海綿状の多孔質層を形成することも可能である。図3に示すように、アルマイト被膜7を多孔質アルマイト被膜11とすることによって、高分子被膜6の密着性を改善することができる。多孔質アルマイト被膜の多孔度は好ましくは5%以上、より好ましくは10%以上である。

## 【 0 0 2 8 】

図4に示すように、アルマイト被膜7を多孔度5%未満の緻密質アルマイト被膜12及びその上に形成される多孔度5%以上の多孔質アルマイト被膜11から構成すると、上記耐食性改善効果及び密着性向上効果が同時に得られ、好ましい。このような場合、多孔質アルマイト被膜の多孔度は20%以上とするのが特に好ましい。また、緻密質アルマイト被膜の膜厚は2～30 $\mu\text{m}$ とするのが好ましく、多孔質アルマイト被膜の膜厚は5～50 $\mu\text{m}$ とするのが好ましい。

## 【 0 0 2 9 】

基材として用いるアルミニウム又はアルミニウム合金中の不純物が多いとアルマイト被膜の均一性が悪化し、密度が低くなる。更にこのような場合、アルマイト被膜が一旦形成されると沸騰水、水蒸気等を用いた緻密化処理の効果が小さくなる。従って、本発明のセパレータに用いるアルミニウム又はアルミニウム合金の純度は99.5%以上であるのが好ましく、99.9%以上であるのがより好ましい。

## 【 0 0 3 0 】

本発明のセパレータは電極又は集電体との接触面を有する。該接触面の形状は、燃料電池の電極又は一次集電体のカーボンペーパー、カーボクロス等と接触するために適した形状であればよく、図面により限定されない。

## 【 0 0 3 1 】

図 1 ～ 4 に示すように、電極又は集電体との接触面（電気伝導面）には導電性被膜 8 を形成するのが好ましい。本発明のセパレータにおいては、高分子耐熱性被膜及び導電性被膜により全表面を覆うのが好ましい。すなわち、電極と接触して電気を通す部分のみを電気伝導性のよい貴金属等で被覆し、通気溝中の表面には化学的又は物理的に安定な高分子耐熱性被膜を形成し、基材の耐食性と電気伝導性を両立させるのが好ましい。

#### 【 0 0 3 2 】

導電性被膜は電気伝導性の良い耐食性を有する材料を用いて形成するのが好ましく、Pt、Au、Pd、Ru、Rh、Ir 及び Ag からなる群から選ばれる金属若しくはその合金、カーボン、又は導電性炭化物により形成するのがより好ましい。Au、Ag、Pt、Pd 等の貴金属系被膜は、接触抵抗が低く耐食性も極めて良好である。カーボンとしては CVD による黒鉛膜、DLC 膜（ダイヤモンドライクカーボン膜）等が好ましい。また黒鉛粉に撥水剤を添加したものを塗布しても良い。電極がカーボンブラックに微量の Pt を添加したもの等からなる場合、カーボン被膜を用いると接触なじみが良い。導電性炭化物としては炭化ケイ素、炭化ニオブ、炭化タングステン等が好ましい。炭化物被膜は接触抵抗が小さいのみならず、良好な耐食性及び耐酸化性を有するので、セパレータの保護膜としても作用する。

#### 【 0 0 3 3 】

導電性被膜はスパッタ法、電気メッキ、湿式メッキ、CVD 等の方法により形成できる。また導電性被膜の膜厚は  $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$  とするのが好ましい。膜厚が  $0.01 \mu\text{m}$  より小さいと膜強度が弱く不安定であり、 $5 \mu\text{m}$  より大きいとコストが高くなるため好ましくない。

#### 【 0 0 3 4 】

##### 【実施例】

以下、実施例により本発明をより詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

#### 【 0 0 3 5 】

##### 実施例 1

表 1 に示す各セパレータ基材（ $1 \text{ mm} \times 150 \text{ mm} \times 150 \text{ mm}$ ）に、プレス加工により深

さ1.0mm及び幅3.0mmの反応ガス通気溝を形成した。各セパレータ基材を、100重量部の酢酸ブチルに15重量部のポリビニルブチラル（PVB）粉末を溶解してなる溶液にディッピングした後、約150℃でキュア処理を施し、全面に高分子耐熱性被膜を形成した。次に、各セパレータの電極接触面の平坦度を向上させるために、電極接触面をラッピング研磨し、洗浄した。この工程により電極接触面上に形成されたPVBからなる高分子耐熱性被膜は除去された。続いて、5 mTorrの純アルゴンガス雰囲気中、基材温度を200℃として電極接触面にAuをスパッタして導電性被膜を形成し、本発明によるセパレータをそれぞれ作製した。なお、Auの導電性被膜の厚さは約1  $\mu\text{m}$ であった。

## 【 0 0 3 6 】

100重量部のカーボンブラックに15重量部のPtペースト（Pt：90重量%）を添加し、更に15重量部のテフロン粒子（平均粒径：0.2  $\mu\text{m}$ ）を撥水剤として添加して電極用ペーストを調製した。この電極用ペーストをプロトン伝導性高分子固体電解質膜（Nafion）に塗布し、乾燥した。これをカーボンクロスで挟み、更に2枚の上記各セパレータで挟み込んで実施例1の燃料電池（単電池）1a～1dをそれぞれ作製した。セパレータの締め付け圧力は10kg/cm<sup>2</sup>とした。

## 【 0 0 3 7 】

高分子耐熱性被膜を形成しないこと以外は上記燃料電池1a～1dの作製方法と同様に、比較用の燃料電池1a'～1d'をそれぞれ作製した。また、セパレータ基材として黒鉛を用い、高分子耐熱性被膜を有さない比較用の燃料電池1e'を上記燃料電池1a～1dと同様に作製した。

## 【 0 0 3 8 】

得られた実施例1の燃料電池1a～1d、及び比較用の燃料電池1a'～1e'に対して、アノード側の反応ガス通気溝に加湿した模擬燃料ガス（70% H<sub>2</sub>、15% CO<sub>2</sub>、15% H<sub>2</sub>O）を供給し、カソード側通気溝に酸化剤として空気を供給して、発電性能安定性を評価した。評価は13日間行った。各燃料電池のセパレータ基材、高分子耐熱性被膜に用いた高分子材料、初期発電電圧、13日間作動後の発電電圧、及び13日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表1に併せて示す。

## 【 0 0 3 9 】

【表 1】

燃料電池	セパレータ基材	高分子材料	初期 発電電圧 (V)	13日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
1a	アルミニウム	PVB	0.82	0.75	腐食なし
1b	チタニウム	PVB	0.79	0.75	腐食なし
1c	ステンレス鋼(SUS304)	PVB	0.78	0.72	腐食なし
1d	炭素鋼(S45CM)	PVB	0.79	0.71	腐食なし
1a'	アルミニウム	—	0.80	0.35	全面に腐食あり
1b'	チタニウム	—	0.81	0.56	一部に腐食あり
1c'	ステンレス鋼(SUS304)	—	0.78	0.61	一部に腐食あり
1d'	炭素鋼(S45CM)	—	0.77	0.39	全面に腐食あり
1e'	黒鉛	—	0.81	0.80	—

## 【0040】

表 1 より、高分子耐熱性被膜を設けた本発明のセパレータは優れた耐食性を示し、該セパレータを用いた実施例 1 の燃料電池 1a～1d は高い発電性能安定性を示すことがわかる。

## 【0041】

実施例 2

導電性被膜の材料として表 2 に示す各材料を用いたこと以外は上記燃料電池 1a の作製方法と同様に、本発明のセパレータを含む実施例 2 の燃料電池 2a～2r をそれぞれ作製した。また、導電性被膜を有さない比較用の燃料電池 2' も同様に作製した。ただし、カーボン (2q) 及び導電性炭化物 SiC (2r) の導電性被膜を形成する際には、被膜組成のターゲットを用いスパッタガスとして Ar (30mTorr) を用いた。得られた実施例 2 の燃料電池 2a～2r、比較用の燃料電池 2'、及び上記比較用燃料電池 1e' に対して、アノード側の反応ガス通気溝に加湿した模擬燃料ガス (70% $H_2$ 、20% $CO_2$ 、10% $H_2O$ ) を供給し、カソード側通気溝に酸化剤として空気を供給して、発電性能安定性を評価した。評価は 12 日間行った。導電性被膜材料、初期発電電圧、12 日間作動後の発電電圧、及び 12 日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表 2 に併せて示す。

## 【0042】



【表 2】

燃料電池	導電性被膜材料	初期 発電電圧 (V)	12日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
2a	Pt	0.80	0.78	腐食なし
2b	Au	0.83	0.81	腐食なし
2c	Pd	0.79	0.76	腐食なし
2d	Ru	0.74	0.68	腐食なし
2e	Rh	0.75	0.72	腐食なし
2f	Ir	0.79	0.77	腐食なし
2g	Ag	0.78	0.73	腐食なし
2h	Pt-Au(10wt%)	0.78	0.76	腐食なし
2i	Pt-Pd(10wt%)	0.79	0.74	腐食なし
2j	Pt-Ru(5wt%)	0.77	0.72	腐食なし
2k	Pt-Rh(5wt%)	0.76	0.72	腐食なし
2l	Pt-Ir(30wt%)	0.78	0.74	腐食なし
2m	Au-Pd(30wt%)	0.76	0.73	腐食なし
2n	Au-Ir(30wt%)	0.68	0.62	腐食なし
2o	Au-Ag(50wt%)	0.72	0.70	腐食なし
2p	Pd-Ag(50wt%)	0.75	0.71	腐食なし
2q	カーボン	0.83	0.81	腐食なし
2r	SiC	0.81	0.78	腐食なし
2'	—	0.49	0.20	全面に腐食あり
1e'	Au	0.82	0.81	—

## 【0043】

表 2 より、前述した好ましい導電性被膜を有する本発明によるアルミニウム製セパレータは優れた耐食性を示し、該セパレータを用いた実施例 2 の燃料電池 2a～2r は高い発電性能安定性を示すことがわかる。

## 【0044】

実施例 3

アルミニウム基材の反応ガス通気溝表面に、表 3 に示す多孔度を有するアルマイト被膜を形成し、その上に高分子耐熱性被膜を形成したこと以外は上記燃料電池 1a の作製方法と同様に、本発明のセパレータを含む実施例 3 の燃料電池 3a～3i をそれぞれ作製した。なお、アルマイト被膜はシュウ酸水溶液中で陽極酸化を行い、次いで沸騰水中に 30 分浸漬した後乾燥して形成した。アルマイト被膜の膜厚

は15 $\mu$ mとした。また、高分子耐熱性被膜を形成しないこと以外は燃料電池3a～3iの場合と同様に、比較用の燃料電池3a'～3i'をそれぞれ作製した。得られた実施例3の燃料電池3a～3i及び比較用燃料電池3a'～3i'の発電性能安定性を上記実施例2と同様に評価した。ただし、評価は48日間行った。各燃料電池のアルマイト被膜の多孔度、初期発電電圧、48日間作動後の発電電圧、及び48日間作動後のアルマイト被膜の剥離状況を表3に併せて示す。

【0045】

【表3】

燃料電池	アルマイト被膜の 多孔度 (%)	初期 発電電圧 (V)	48日後の 発電電圧 (V)	アルマイト被膜の 剥離状況
3a	1.17	0.81	0.67	一部剥離
3b	2.19	0.78	0.65	一部剥離
3c	3.56	0.81	0.68	一部剥離
3d	4.82	0.79	0.74	ほぼ剥離なし
3e	6.67	0.79	0.73	ほぼ剥離なし
3f	7.40	0.83	0.78	ほぼ剥離なし
3g	9.84	0.81	0.77	剥離なし
3h	15.7	0.76	0.72	剥離なし
3i	25.3	0.80	0.76	剥離なし
3a'	1.17	0.79	0.52	剥離
3b'	2.19	0.78	0.54	剥離
3c'	3.56	0.81	0.61	一部剥離
3d'	4.82	0.76	0.60	一部剥離
3e'	6.67	0.79	0.63	一部剥離
3f'	7.40	0.83	0.34	(腐食発生)
3g'	9.84	0.79	0.42	(腐食発生)
3h'	15.7	0.82	0.26	(腐食発生)
3i'	25.3	0.80	0.37	(腐食発生)

【0046】

表3より、本発明のセパレータがアルマイト被膜を有する場合、その多孔度は4.82%以上であるのが好ましく、9.84%以上であるのがより好ましいことがわかる。また燃料電池3a'～3i'に用いたセパレータと比較して、本発明のセパレータにおいては高分子耐熱性被膜を形成することによりアルマイト被膜の剥離を抑制できることが確認された。

【 0 0 4 7 】

実施例 4

高分子耐熱性被膜を形成する高分子材料として表 4 に示す各材料を用いたこと以外は上記燃料電池 1a の作製方法と同様に、本発明のセパレータを含む実施例 4 の燃料電池 4a ～ 4w をそれぞれ作製した。ただし、高分子耐熱性被膜の形成方法は、用いる高分子材料によって適宜溶液塗布法及び熱融着法から選択した。得られた実施例 4 の燃料電池 4a ～ 4w の発電性能安定性を上記実施例 2 と同様に評価した。各燃料電池の高分子材料、初期発電電圧、12 日間作動後の発電電圧、及び 12 日間作動後の耐腐食状況を表 4 に併せて示す。

【 0 0 4 8 】

【表 4】

燃料電池	高分子材料	初期 発電電圧 (V)	12日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
4a	ポリビニルアルコール(PVB)	0.83	0.80	腐食なし
4b	ポリカーボネイト	0.80	0.78	腐食なし
4c	無水トリメチル酸- 無水マレイン酸ビス(アミノフェニル)メタン共重合体	0.79	0.78	腐食なし
4d	ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)	0.80	0.79	腐食なし
4e	ポリフッ化ビニリデン	0.82	0.80	腐食なし
4f	ポリアルキレン(C2-4)カーボネート	0.83	0.80	腐食なし
4g	ポリフッ化テレフタレート(PBT)	0.80	0.78	腐食なし
4h	ポリエチレンテレフタレート(PET)	0.79	0.78	腐食なし
4i	ポリエチレン	0.83	0.81	腐食なし
4j	スチレン-ジビニルベンゼン共重合体の 塩素化物	0.82	0.79	腐食なし
4k	ポリプロピレン	0.81	0.78	腐食なし
4l	N-メチル-N-(ビニルベンジル)ピペリジニウムクロリ ド-スチレン-ジビニルベンゼン共重合体	0.79	0.76	腐食なし
4m	1,1'-(エチルイミノ)ジ-2-プロパノール- ビス(4-イソシアナトシクロヘキシル)メタン重付加物	0.83	0.81	腐食なし
4n	シリコン樹脂	0.82	0.79	腐食なし
4o	ポリスルホン	0.83	0.81	腐食なし
4p	ポリエーテルスルホン	0.80	0.78	腐食なし
4q	ビスコースレーヨン	0.79	0.77	腐食なし
4r	キュアラ	0.83	0.82	腐食なし
4s	アセテート樹脂	0.79	0.76	腐食なし
4t	プロミックス	0.83	0.82	腐食なし
4u	塩化ビニル-塩化ビニリデン共重合体	0.82	0.80	腐食なし
4v	ポリ塩化ビニル(PVC)	0.81	0.78	腐食なし
4w	スチレン- $\alpha$ -メチルスチレン-アクリル酸共重合体	0.84	0.82	腐食なし

【0049】

表4より、前述した好ましい高分子耐熱性被膜を有する本発明のセパレータはいずれも優れた耐食性を示し、該セパレータを用いた実施例4の燃料電池4a~4wは高い発電性能安定性を示すことがわかる。

【0050】

【発明の効果】

以上詳述したように、本発明の燃料電池用セパレータは金属板を基材として用

いるため、従来の黒鉛セパレータに比べ非常に軽量であり、量産性が高く加工コストを低減できる。加えて本発明においては、反応ガス通気溝表面上に高分子耐熱性被膜を形成することにより、優れた耐食性を有するセパレータを得ることができる。本発明のセパレータを用いた燃料電池は高い発電性能安定性を有する。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の一実施例による燃料電池用セパレータを含む燃料電池の一例を示す部分概略図である。

【図 2】 本発明の他の実施例による燃料電池用セパレータを示す概略図、及びその高分子耐熱性被膜の構造を示す部分拡大図である。

【図 3】 本発明の他の実施例による燃料電池用セパレータを示す概略図、及びその高分子耐熱性被膜及びアルマイト被膜の構造を示す部分拡大図である。

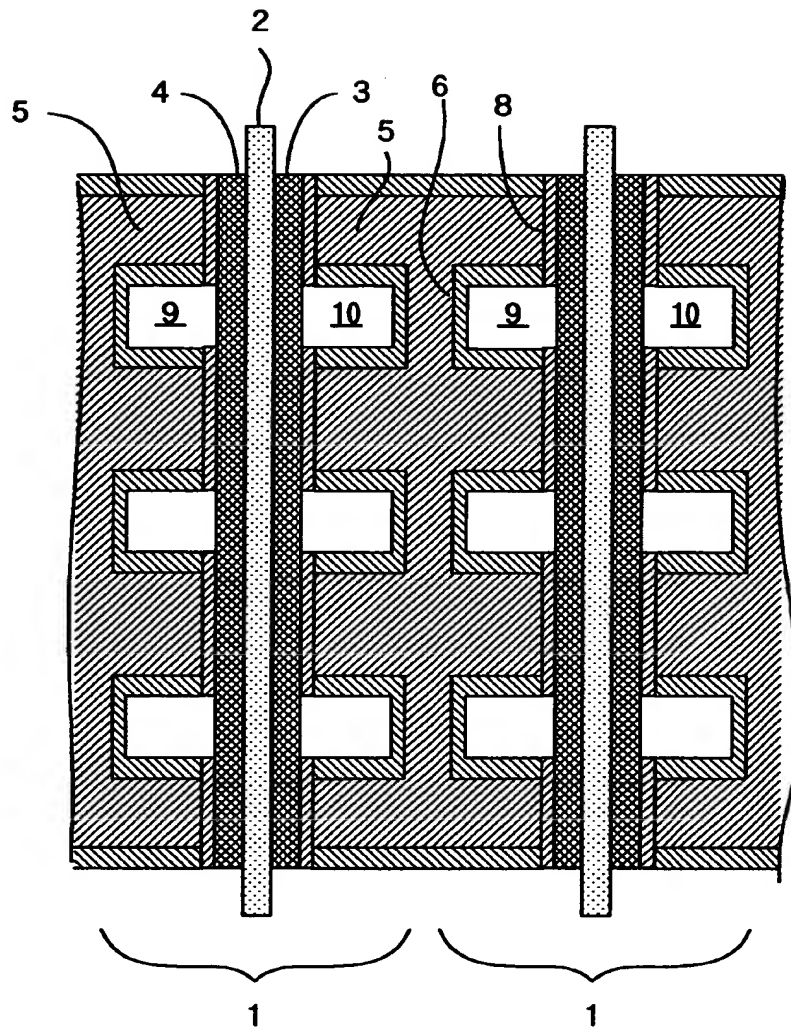
【図 4】 本発明の他の実施例による燃料電池用セパレータを示す概略図、及びその高分子耐熱性被膜及びアルマイト被膜の構造を示す部分拡大図である。

【符号の説明】

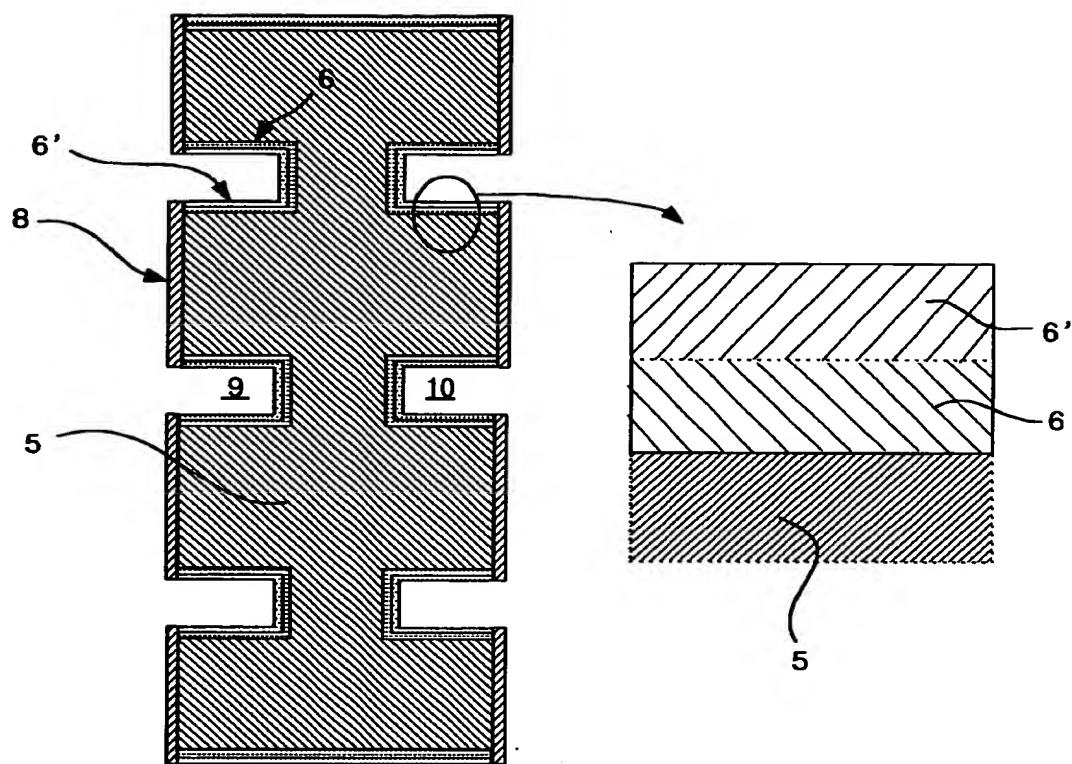
- 1 . . . 単電池
- 2 . . . 固体電解質
- 3 . . . アノード
- 4 . . . カソード
- 5 . . . セパレータ
- 6、6' . . . 高分子耐熱性被膜
- 7 . . . アルマイト被膜
- 8 . . . 導電性被膜
- 9、10 . . . 反応ガス通気溝
- 11 . . . 多孔質アルマイト被膜
- 12 . . . 緻密質アルマイト被膜

【書類名】 図面

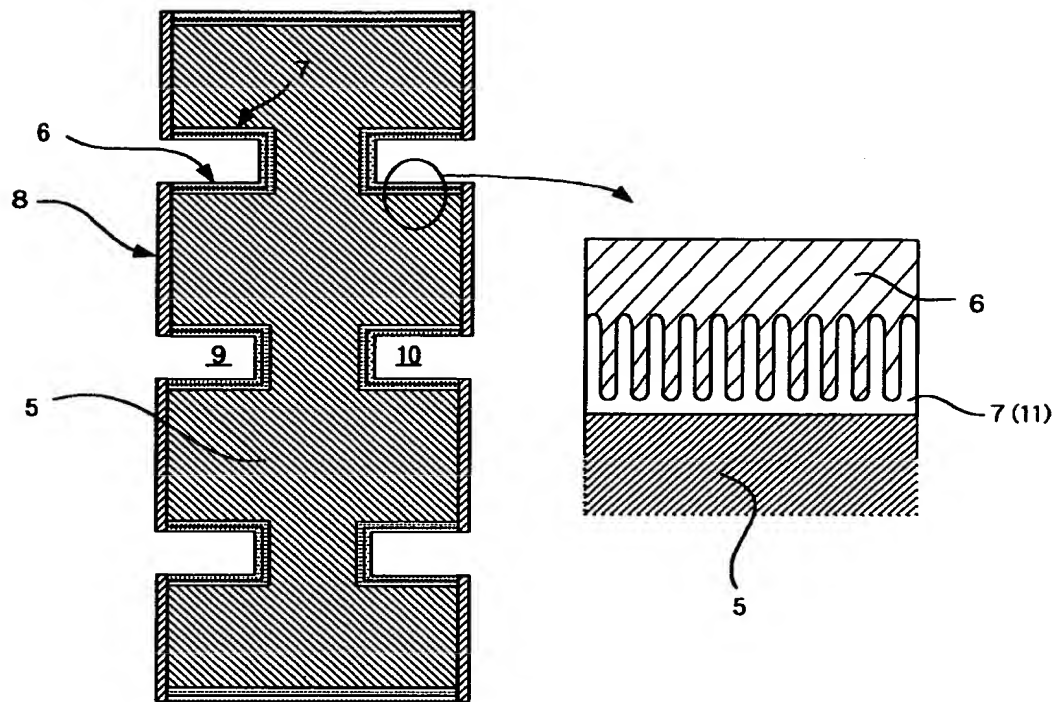
【図 1】



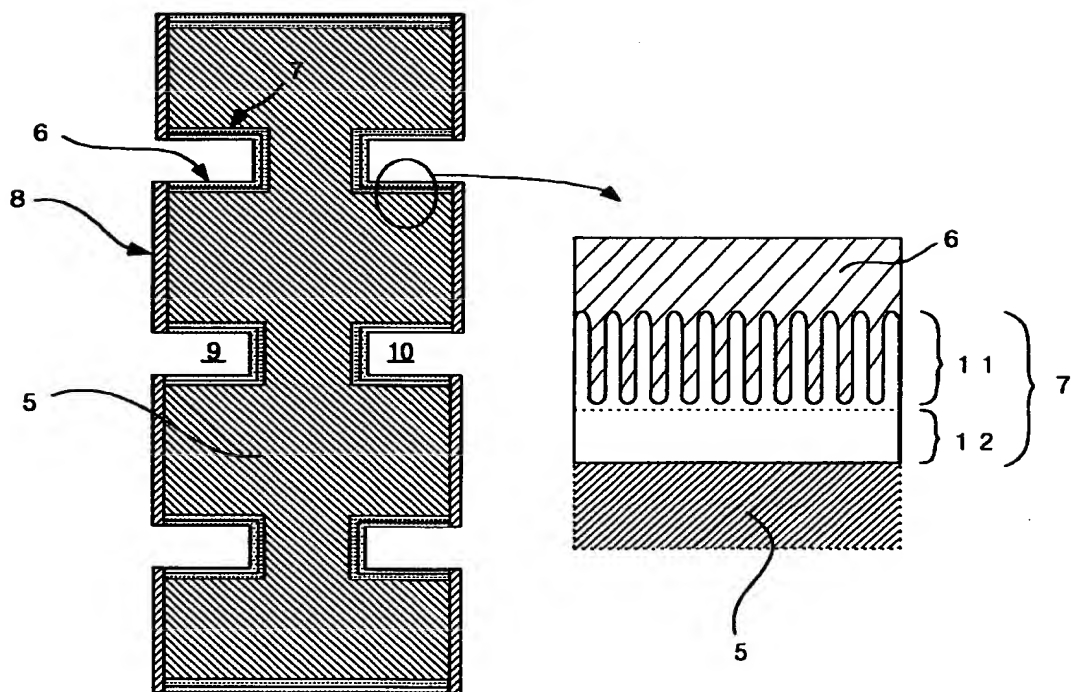
【図 2】



【図3】



【図4】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 優れた耐食性を有する金属製燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 金属板からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有する燃料電池用セパレータであって、該反応ガス通気溝の表面に高分子耐熱性被膜が形成されている燃料電池用セパレータ。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000139023]

1. 変更年月日 1990年 9月 1日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区九段北1丁目13番5号

氏 名 株式会社リケン